

特開平11-335199

(43) 公開日 平成11年(1999)12月7日

(51) Int.Cl.<sup>6</sup>  
C 3 0 B 29/30  
H 0 1 L 25/02  
21/20

### 識別記号

F I  
C 3 0 B 29/30  
25/02  
H 0 1 L 21/20

C

審査請求 未請求 請求項の数 6 OL (全 8 頁)

(21)出願番号 特願平10-145613  
(22)出願日 平成10年(1998)5月27日

(71)出願人 000004064  
日本碍子株式会社  
愛知県名古屋市瑞穂区須田町 2 番56号

(72)発明者 今枝 美能留  
愛知県名古屋市瑞穂区須田町 2 番56号 日  
本碍子株式会社内

(72)発明者 吉野 隆史  
愛知県名古屋市瑞穂区須田町 2 番56号 日  
本碍子株式会社内

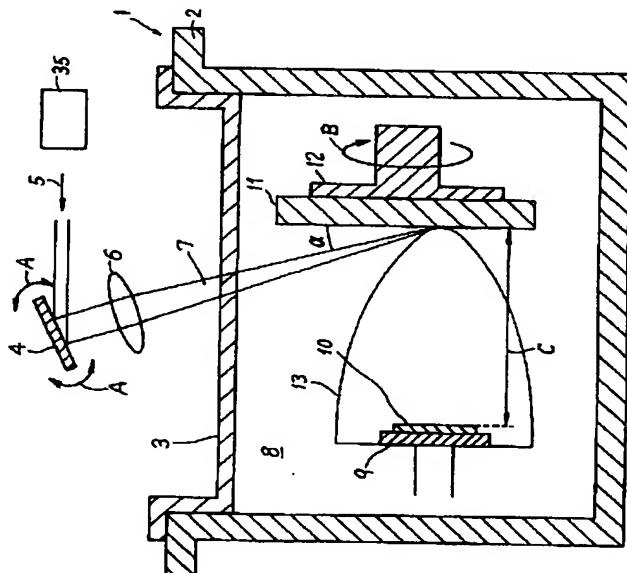
(74)代理人 弁理士 杉村 晓秀 (外 8名)

(54) [発明の名称] 単結晶膜の製造方法

(57) 【要約】

【課題】ニオブ酸リチウムカリウム (KLN) 単結晶またはニオブ酸リチウムカリウム-タンタル酸リチウムカリウム固溶体 (KLNT) 単結晶膜を育成する方法において、光挿入損失の少ない単結晶膜が得られるようにする。

【解決手段】前記単結晶膜用の材料からなるターゲット11に対してレーザー光を照射し、ターゲット11中の分子を乖離および蒸発させてガス状にし、KLNNT単結晶またはKLN単結晶からなる下地10上に、単結晶膜をエピタキシャル成長させる。好ましくは、下地10が単結晶基板からなり、この単結晶基板をマイクロ引き下げ法によって作製し、ターゲット11を構成する材料が、KLNNTまたはKLNの単結晶からなるか、あるいはこれらの焼結体からなる。



## 【特許請求の範囲】

【請求項1】ニオブ酸リチウムカリウム-タンタル酸リチウムカリウム固溶体単結晶またはニオブ酸リチウムカリウム単結晶からなる単結晶膜を製造する方法であつて、

前記単結晶膜用の材料からなるターゲットに対してレーザー光を照射し、前記ターゲット中の分子を乖離および蒸発させてガス状にし、ニオブ酸リチウムカリウム-タンタル酸リチウムカリウム固溶体単結晶またはニオブ酸リチウムカリウム単結晶からなる下地上に前記単結晶膜をエピタキシャル成長させることを特徴とする、単結晶膜の製造方法。

【請求項2】前記下地が単結晶基板からなり、この単結晶基板をマイクロ引き下げ法によって作製することを特徴とする、請求項1記載の単結晶膜の製造方法。

【請求項3】前記ターゲットを構成する前記材料が、ニオブ酸リチウムカリウム-タンタル酸リチウムカリウム固溶体単結晶またはニオブ酸リチウムカリウム単結晶からなることを特徴とする、請求項1または2記載の単結晶膜の製造方法。

【請求項4】前記ターゲットを構成する前記材料が焼結体からなることを特徴とする、請求項1または2記載の単結晶膜の製造方法。

【請求項5】前記単結晶膜が光導波層であることを特徴とする、請求項1-4のいずれか一つの請求項に記載の単結晶膜の製造方法。

【請求項6】前記単結晶膜がアンダークラッド層またはオーバークラッド層であることを特徴とする、請求項1-4のいずれか一つの請求項に記載の単結晶膜の製造方法。

## 【発明の詳細な説明】

## 【0001】

【発明の属する技術分野】本発明は、ニオブ酸リチウムカリウム-タンタル酸リチウムカリウム固溶体単結晶またはニオブ酸リチウムカリウム単結晶からなる単結晶膜を製造する方法に関するものである。

## 【0002】

【従来の技術】周期的分極反転構造の光導波路を形成し、この光導波路に赤外波長の半導体レーザー光を導入し、青色光を得る素子が提案されている（米国特許番号4,740,265号、特開平5-289131号公報、特開平5-173213号公報）。例えば、特開平6-51359号公報においては、第二高調波発生素子に分極反転層と光導波路と誘電体膜と反射グレーティング層とを設け、誘電体膜の厚さを限定することを開示している。

【0003】しかし、この種の技術では、高精度にドメインを制御する必要があるが、高精度のドメイン制御は困難であり、またこの位相整合のための許容温度範囲が±0.5℃である。更に光導波路の光損傷が、3mWの

光エネルギーから認められる。これらの理由から、実用のデバイスとしては問題があることが指摘されている。

【0004】一方、本出願人は、特開平8-339002号公報において、疑似位相整合処理や高精度のドメイン制御を不要とした、光損傷の少ない第二高調波発生素子を提案した。本公報においては、液相エピタキシャル成長法によって、ニオブ酸リチウムカリウム-タンタル酸リチウムカリウム固溶体単結晶（「KLN-T単結晶」と呼ぶことがある）、またはニオブ酸リチウムカリウム単結晶（「KLN単結晶」と呼ぶことがある）の膜を、液相エピタキシャル法によって育成した。

【0005】また、有機金属気相成長法（MOCVD法）によって、ニオブ酸リチウムカリウム単結晶基板上に、ニオブ酸リチウムカリウム-タンタル酸リチウムカリウム固溶体単結晶の1層または2層の薄膜を成膜することが提案されている（特開平8-6083号公報）。これらの薄膜のいずれかを光導波路として使用する。

## 【0006】

【発明が解決しようとする課題】上記の液相エピタキシャル法によってKLN-TやKLN単結晶膜を育成した場合には、基板を構成するKLN-T単結晶の融点が1,000℃前後であり、キュリー温度が500℃程度である。このため、基板が溶融しない範囲内で融液から単結晶を析出させる必要があるので、実際には600-900℃で成膜する必要がある。このため、析出する組成の範囲が限られる。また、成膜温度が通常は600℃-900℃であって、基板のキュリー温度よりも高いので、膜が多分域化するため、単結晶膜を育成した後に、単結晶膜を単分域化処理する必要がある。この単分域化処理によって、単結晶膜の結晶性が低下し、光挿入損失が増大する。

【0007】一方、有機金属気相成長法の場合も、K、Li、Nbの各有機金属酸化物材料の分解温度の関係で、500-800℃で成膜を行う必要があり、単結晶膜が多分域化するので、成膜後に単分域化処理を必要とするので、結晶性が低下する。

【0008】本発明の課題は、KLNまたはKLN-T単結晶膜を育成する方法において、光挿入損失の少ない単結晶膜が得られるようにすることである。

## 【0009】

【課題を解決するための手段】本発明者は、レーザーアブレーション法を応用し、ニオブ酸リチウムカリウム-タンタル酸リチウムカリウム固溶体単結晶またはニオブ酸リチウムカリウム単結晶の材料からなるターゲットに対してレーザー光を照射し、ターゲット中の分子を乖離および蒸発させてガス状にするとともに、ニオブ酸リチウムカリウム-タンタル酸リチウムカリウム固溶体単結晶またはニオブ酸リチウムカリウム単結晶からなる基板上に、前記単結晶膜をエピタキシャル成長させることを想到した。この結果、光挿入損失の少ない光学的特性の

非常に優れた単結晶膜が得られることを見いだし、本発明に到達した。

【0010】一般的には、単結晶薄膜の気相成長法としては、MOCVD法、MBE法、レーザーアブレーション法が知られている。MOCVD法に関しては、かなり研究がなされており、各種の薄膜成長が実施されている。これに対して、レーザーアブレーション法は、シリコン半導体へのPZT多結晶成膜による強誘電体RAMメモリーへの応用が知られているが、酸化物単結晶膜の製造例はほとんどなく、かつ光学単結晶の製造例はほとんどない。

【0011】光学単結晶ないし酸化物単結晶へのレーザーアブレーション法の適用例としては、川合、河合らが、ニオブ酸リチウム膜をタンタル酸リチウム基板、またはサファイア基板上に形成することを試みている (Appl. Phys. Lett. 61(8)、1000(1992)、62(23)、3046(1993))。しかし、この成膜法では、光導波路素子として使用可能な光挿入損失特性を持った薄膜は、得られていない。

【0012】本発明によれば、例えば、従来のMOCVD法で得られたKLNT単結晶膜と比較した結果、光挿入損失の低減に伴い、第二高調波発生効率が例えば約30%も向上した。

【0013】この理由は明確ではないが、たとえ基板の結晶性が同程度であったとしても、MOCVD法では、KLNT基板を酸化性雰囲気下で比較的に高温に加熱するために、KLNT基板内のリチウム、カリウムが基板の表面側へと向かって外拡散を起こし、基板の表面で酸化し、飛散するために、基板の表面領域の結晶性が低下し、単結晶膜の性質に影響を及ぼすものと推定される。

【0014】しかも、本発明によれば、成膜時の基板の温度が200-600°C (特に好ましくは300°C-500°C) の条件で、単結晶膜を形成することができる。この結果、単結晶基板の単分域化処理が不要となる。

【0015】また、第二高調波発生素子においては、KLNT単結晶膜ないしKLN単結晶膜の位相整合波長を短波長化したり、その変換効率を向上させるために、KLNTないしKLN単結晶中にルビジウムを添加した単結晶材料が求められている。しかし、ルビジウムを含んで、かつ取り扱い易い有機金属化合物は知られていないので、MOCVD法による成膜は、実際上是不可能であった。しかし、本発明によれば、ターゲットとして、酸化物混合粉末、焼結体、単結晶の中から自由に選べるので、ルビジウムを含有するKLNT単結晶膜、あるいはKLN単結晶膜を成膜できる。

【0016】本方法は、光学部品、特に光導波路デバイスを製造するのに好適である。本方法によって、光導波路を作製することが好ましいが、アンダークラッド層およびオーバークラッド層を作製することもできる。

【0017】また、アンダークラッド層上に光導波路

を、本発明の方法によって順次に作製することができ、また光導波路上にオーバークラッド層を順次に作製することができる。また、本発明の方法によって、アンダークラッド層、光導波路、オーバークラッド層を順次に設けることもできる。本明細書で言う「下地」とは、本発明によって前記単結晶膜をその上に直接形成するための下地を言い、単結晶基板、アンダークラッド層、光導波層であり得る。

【0018】前記単結晶基板は、本発明者が特願平7-62586号明細書、特願平7-62585号明細書において提案したマイクロ引下げ法によって得られたものであることが好ましい。

【0019】本発明によって、第二高調波発生素子の、基本波から第二高調波を発生させるための光導波層を製造する場合には、光導波層の組成が、 $K_3 Li_{2-2a}(Nb_{1-b}Ta_b)_{5+5c}O_{15-a+12.5c}$  (ただし、 $-0.5 \leq a \leq 0.625$ 、 $0 \leq b \leq 0.5$ 、 $0.8 \leq (5-2a)/(5+5c) \leq 1.2$ ) の基本組成を有していることが好ましい。

【0020】この場合、基板、アンダークラッド層、オーバークラッド層の組成は、 $K_3 Li_{2-2x}(Nb_{1-y}Ta_y)_{5+5z}O_{15-x+12.5z}$  ( $-0.5 \leq x \leq 0.625$ 、 $0 \leq y \leq 0.5$ 、 $0.8 \leq (5-2x)/(5+5z) \leq 1.2$ ) の基本組成であることが特に好ましい。

【0021】 $[0.8 \leq (5-2x)/(5+5z)、(5-2a)/(5+5c) \leq 1.2]$  という上記の条件は、 $[-(1-2x)/6 \leq z \leq (1-2x)/4$ 、または $-(1-2a)/6 \leq c \leq (1-2a)/4$ ] と表示することができる。

【0022】上記の組成において、 $-0.5 \leq a, x \leq 0.625$  と限定したのは、この組成範囲内でKLN材料がタンクステンブロンズ構造となりえるからである。これよりもカリウムが多い組成では、 $KNbO_3$  の斜方晶系、 $Li$  が多い組成では $LiNbO_3$  の六方晶系となってしまう。

【0023】 $0 \leq b, y \leq 0.5$  と限定したのは、 $Ta$  の置換量が増加するのに従って、キュリー温度が下がり、 $b, y = 0.5$  のときにはキュリー温度が室温付近になってしまふため、強誘電体にならず、第二高調波発生の発生が認められなくなるからである。

【0024】 $0.8 \leq (5-2a)/(5+5c)、(5-2x)/(5+5z) \leq 1.2$  の組成範囲は、引下げ法による場合の  $(K+Li)$  と  $Nb$  の比率によって、タンクステンブロンズの構造の単一性が得られる領域を示しており、カイロボーラス法によって形成可能な組成範囲よりも広い組成範囲で、均一な単結晶を育成することができた。

【0025】KLNまたはKLNTの前記基本組成において、 $Ta$  の置換量が大きくなるほど、単結晶の屈折率は小さくなってくる。 $b, y$  が小さいほど、単結晶の屈

折率が小さくなる。また、K L N組成においては、N bの量が大きくなるほど、即ち、c、zが大きくなるほど、単結晶の屈折率が大きくなる。

【0026】各基本組成としては、前出したように、K、L i、N b、T a、Oからなるタンゲステンブローナ構造を考えているが、この構造を保持する範囲内での元素の置換、例えば、N a、R b等によるK、L iの置換や、C rおよびE r、N d等の希土類元素等のレーザー発振用ドーピング剤を添加することも可能であった。

【0027】レーザーアブレーションとは、加工対象である材料を構成する各分子間の結合エネルギーと同等のエネルギーの波長の光を、材料へと向かって照射することによって、各分子を解離、蒸発させる方法である。レーザー光の波長は、150 nm - 350 nm とすることが好ましい。

【0028】ターゲットを加工するためのレーザービームの種類としては、エキシマレーザー、N d-Y A Gレーザーの第4次高調波等を好ましく使用できる。エキシマレーザーは、紫外線のパルス繰り返し発振レーザーであり、A r F (波長193 nm)、K r F (波長248 nm)などの気体状の化合物が発振する紫外光を、光共振機により方向性を揃えて取り出したものである。

【0029】エキシマレーザーの応用技術に関する文献としては、「O plus E」1995年11月号、第64~108頁の特集「実用期に入ったエキシマレーザー」を挙げることができる。

【0030】図1は、本発明の実施形態を説明するための模式図である。チャンバー1は、チャンバー本体2と、チャンバー本体2に取り付けられているレーザー光透過窓3とからなる。チャンバー1中にはターゲット11が設けられており、ターゲット11は回転部材12に取り付けられている。ターゲット11に対向する位置に、例えば単結晶基板10が設けられており、単結晶基板10はヒーター9に上に固定されている。

【0031】光源35からレーザー光5を出射させ、回転鏡4によって反射し、光学系6を通して収束光7を得、収束光7を透過窓3を通してターゲット11に照射する。このときターゲット11は矢印Bのように回転している。これによって炎13が単結晶基板10の方へと向かって広がるように発生する。単結晶基板10の温度を調節し、その上に単結晶膜を生成させる。回転鏡4を矢印Aのように回動させることによって、収束光7のターゲット11に対する入射角度 $\alpha$ を調整する。

【0032】次に、本発明によって製造できる第二高調波発生装置の好適形態を例示する。

【0033】図2~図5は、反射グレーティング部と波長変換用光導波路とを一体の基板に設けた実施形態に係るものである。図1は、本例の第二高調波発生装置17の模式的一部平面図である。

【0034】第二高調波発生装置17は、例えば直方体

形状の基板18を備えている。基板18は、好ましくは前述したような組成範囲のK L N T 単結晶からなる。基板18の表面側には、波長変換用光導波路20と、反射グレーティング部21とが設けられており、また光導波路20と反射グレーティング部21の上とに薄膜ヒーター19が設けられている。なお、図2は、19、20、21の平面的位置関係を模式的に示すものである。15はレーザー光源である。

【0035】基板18の入射側端面18aから、基本波(常光線)16を入射させる。基本波16は、光導波路20内に入射し、反射グレーティング部21を通過するが、反射グレーティング部からの光の帰還によって、基本波の波長がロックされる。薄膜ヒーター19を発熱させたとき、反射グレーティング部21下における光導波路20の常光屈折率はほとんど変化しないので、ロック波長の強度への影響は小さい。これとともに、薄膜ヒーター19を動作させることによって、光導波路20内における異常光屈折率を増加させることができる。これによって、第二高調波22の波長を動的に制御し、第二高調波の出力を増大させ、最適化することができる。23は、光導波路の基板端面18b側から出射する常光線である。

【0036】なお、薄膜ヒーター19の代わりに、ベルチエ素子などの、薄膜状の吸熱部材を設けることができる。

【0037】次に、図3~図5を参照しつつ、図2の装置17の好適例について述べる。図3~図5は、図2の装置の一形態を示すものであり、図3は第二高調波発生装置17を模式的に示す側面図であり、図4(a)は、波長変換用光導波路の部分を拡大して示す部分斜視図(誘電体層および薄膜ヒーターを設ける前の状態を示す)であり、図4(b)は、図4(a)と同じ部分を示す部分斜視図(誘電体層および薄膜ヒーターを設けた後の状態を示す)であり、図5は図4(b)の横断面図である。

【0038】単結晶基板18の表面に、リッジ型の波長変換用光導波路20が設けられており、光導波路20の上面に、オーバークラッド層26が設けられている。オーバークラッド層26の上面には、例えば反応性イオンエッティング法によって、一定周期の回折格子をなす溝が設けられており、これが反射グレーティング部21を形成している。

【0039】このリッジ型の光導波路20およびオーバークラッド層26を覆うように、誘電体層27が設けられている。誘電体層27の上の所定領域に、薄膜ヒーター19が設けられている。波長変換用光導波路20、オーバークラッド層26、誘電体層27によって、リッジ構造体32が構成されており、リッジ構造体32の両側には細長い溝30が形成されている。

【0040】誘電体層の材質は限定されないが、T a<sub>2</sub>

$O_5$ 、 $SiO_2$ 、 $TiO_2$ 、 $HfO_2$ 、 $Nb_2O_5$ が好ましい。薄膜ヒーターの材質は、 $Ni$ 、 $Ti$ 、 $Ta$ 、 $Pt$ 、 $Cr$ が好ましい。また、薄膜ヒーターの代りに、ペルチ工素子を設けることができる。

【0041】本発明の製造方法に従って、光導波層20および/またはオーバークラッド層26を形成することができる。この際には、光導波層20を有機金属気相成長法によって作製した後に、オーバークラッド層26を本発明の方法によって育成することも可能である。

【0042】

【実施例】(KLNT単結晶基板の製造)

特開平8-339002号公報に記載の方法に従って、KLNT単結晶膜基板を製造した。具体的には、炭酸カリウム、炭酸リチウム、酸化ニオブおよび酸化タンタルを、30:20:48:2の組成比率で調合して原料粉末を製造した。この原料粉末約50gを、白金製の平板形状のルツボ(厚さ1mm、幅50mm)内に供給し、このルツボを所定位置に設置した。上側炉内の空間の温度を1100~1200°Cの範囲に調整し、ルツボ内の原料を融解させた。単結晶育成部の温度を1050°C~1150°Cとし、20mm/時間の速度でa軸方向にC面の単結晶基板を引き下げたところ、C面のKLNT単結晶基板を引き下げることに成功した。

【0043】得られた単結晶基板の組成は、 $K_3Li_2(Nb_{0.48}Ta_{0.02})_5O_{15}$ であり、寸法は、縦50mm、横50mm、厚さ1mmであった。この単結晶基板の両方の正面に、それぞれ白金の電極を設置し、電気炉内で600°Cに加熱した後、直流電圧を印加して、单分域化処理を行った。この単結晶基板の特性を評価したところ、入射光波長900nmにおいて位相整合する組成であり、屈折率の面内分布は、測定精度の範囲内では観測されなかった。

【0044】(KLNT単結晶膜(光導波層)の製造)前記の単結晶基板10を使用し、図1に示す装置内で、 $K:Li:Nb=6:4:5$ の調合組成で、成膜を行った。具体的には、ターゲット材料11として $K_6Li_4Nb_5O$ の組成を有する、直径30mm、厚さ5mmの円盤形状の焼結体を使用した。透過窓3の材質は石英とした。

【0045】波長193nmのArFエキシマレーザー光を導入し、この焼結体に照射した。チャンバー1内の雰囲気8の圧力を約50mtorrとし、単結晶基板10の加熱温度を450°Cとし、単結晶基板に成膜した。レーザー光のパルス幅は10nsとし、繰り返し速度は10ヘルツとし、入射角 $\alpha$ は17度とし、レーザー光の照射強度30mJ/cm<sup>2</sup>とし、ターゲットと単結晶基板との距離は50mmとした。この結果、単結晶基板上に、 $K_3Li_2Nb_5O_{15}$ の組成を有する膜が形成された。このときの育成速度は、1.5μm/時間であり、膜の厚さは約5μmであり、膜の厚さはその全面にわた

ってほぼ均一であった。

【0046】この単結晶基板の特性を評価したところ、波長850nmにおいて位相整合する波長であり、また屈折率の面内分布は、測定精度の範囲内では観測されなかった。この膜を鏡面研磨加工し、4.0±0.2μmの厚さに加工した。

【0047】(リッジ型の三次元光導波路の作製)単結晶膜を作製した後、リフトオフ法により、幅4μmの直線光導波路が得られるような形状のチタンマスクを、単結晶膜の上に成膜した。マスクの厚さは、6000オングストロームとした。この単結晶基板に対して、アルゴンイオンによるRFプラズマエッチングを行い、幅4μm、高さ3μmのリッジ型の三次元直線光導波路を作製した。このときの条件は、RF出力：200W、ガスの全圧：0.08Pa、エッチングレート：10nm/分であった。

【0048】(第二高調波発生効率の測定結果)リッジ型光導波路を、光導波路が延びる方向の長さ7mm、幅2mmの寸法に切り出し、光導波路の両端面を光学研磨し、チップを作製した。このとき、1枚の基板から、幅25mm、長さ7mmのチップを、175個作製した。各チップの一方の端面に、波長850nmの半導体レーザー(出力150mW)を直接に結合し、TEモードで入射し、チップの他方の端面から出射する425nmの青色二次高調波の出力を測定した。

【0049】この結果、シングルモードで、約20mWの出力を得た。この出力において、光導波路における光損傷は、まったく認められなかった。また、すべてのチップでの位相整合波長のバラツキは、0.05nm以下であり、出力のバラツキは±2%以下であり、実用デバイスの作製方法としては優れたものであった。

【0050】(有機金属気相成長法による成膜と第二高調波発生効率の評価)次いで、有機金属気相成長法によって、前記の単結晶基板上に $K_3Li_2Nb_5O_{15}$ の組成の光導波層を形成した。膜の作製条件は、単結晶基板の温度を750°Cとし、反応管内の圧力を20Torrとし、成膜速度を0.8μm/時間とした。厚さ2.5μmの光導波層を得た。

【0051】この光導波層を、反応性イオンエッチング法によって加工し、溝と、幅5μm、深さ3μmのリッジ型の三次元光導波路を作製した。

【0052】この試料について、前記のようにして第二高調波の発生効率を測定したところ、シングルモードで、約15mWの出力を得た。この出力において、基板の光導波路における光損失は、0.5dBであった。また、すべてのチップでの位相整合波長のバラツキは、0.5nm以下であり、出力のバラツキは±5%以下であった。

【0053】

【発明の効果】以上述べたように、本発明によれば、K

L N または K L N T 単結晶膜を育成する方法において、単結晶膜の多分域化を招くことなく、しかも光挿入損失の少ない単結晶膜が得られる。

### 【図面の簡単な説明】

【図1】本発明の方法を実施するための装置の好適例を模式的に示す図である。

【図2】本例の第二高調波発生装置17の模式的部平面図である。

【図3】第二高調波発生装置17の好適例を模式的に示す側面図である。

【図4】(a)は、波長変換用光導波路の部分を拡大して示す部分斜視図(誘電体層および薄膜ヒーターを設ける前の状態を示す)であり、(b)は、(a)と同じ部

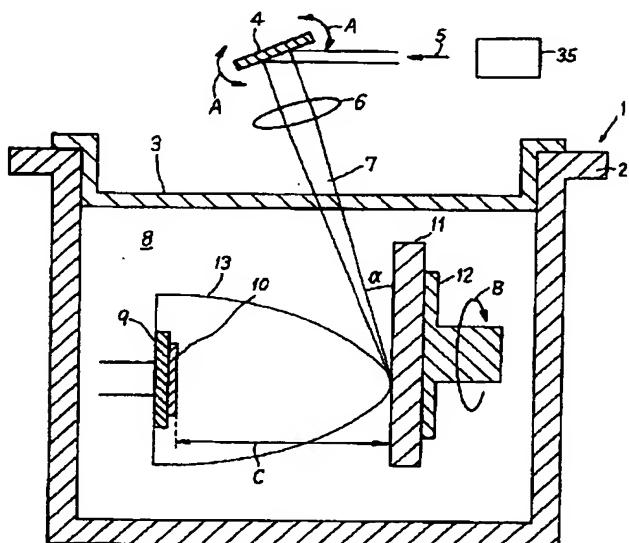
分を示す部分斜視図（誘電体層および薄膜ヒーターを設けた後の状態を示す）であり、図5は図4（b）の横断面図である。

【図5】図4 (b) の横断面図である。

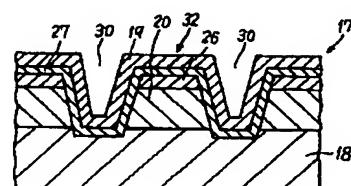
### 【符号の説明】

1 チャンバー 2 チャンバー本体 3 レーザー光  
 透過窓  
 5 レーザー光 7 収束光 8 チャンバー内雰囲気  
 9 ヒーター 10 単結晶基板 11 ターゲット  
 15 レーザー光源 16 基本波(常光線)  
 17 第二高調波発生装置 18 直方体形状の基板  
 20 波長変換用光導波路 26 オーバークラッド層  
 27 誘電体層 32 リッジ構造体

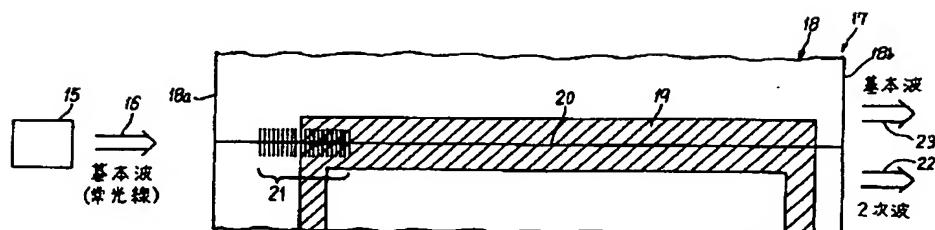
(图 1)



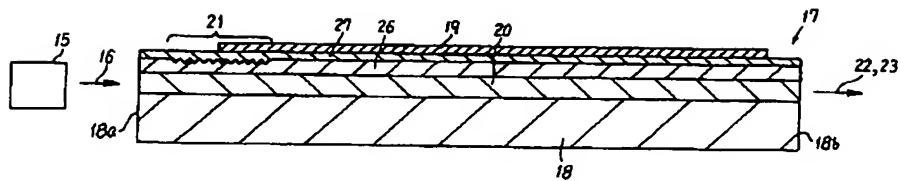
[図5]



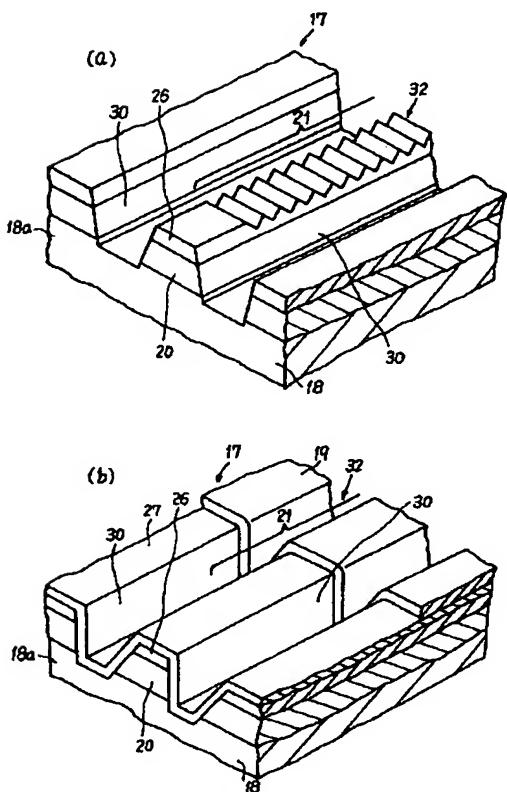
[図2]



【図3】



【図4】



## 【手続補正書】

【提出日】平成11年5月24日

## 【手続補正1】

【補正対象書類名】明細書

【補正対象項目名】0009

【補正方法】変更

## 【補正内容】

【0009】

【課題を解決するための手段】本発明者は、レーザー・アブレーション法を応用し、ニオブ酸リチウムカリウム-タンタル酸リチウムカリウム固溶体単結晶またはニオブ酸リチウムカリウム単結晶用の材料、例えば単結晶または焼結体からなるターゲットに対してレーザー光を照射

し、ターゲット中の分子を乖離および蒸発させてガス状にするとともに、ニオブ酸リチウムカリウム-タンタル酸リチウムカリウム固溶体単結晶またはニオブ酸リチウムカリウム単結晶からなる基板上に、前記単結晶膜をエピタキシャル成長させることを想到した。この結果、光挿入損失の少ない光学的特性の非常に優れた単結晶膜が得られることを見いだし、本発明に到達した。

## 【手続補正2】

【補正対象書類名】明細書

【補正対象項目名】0024

【補正方法】変更

## 【補正内容】

【0024】 $0.8 \leq (5 - 2a) / (5 + 5c)$ 、  
 $(5 - 2x) / (5 + 5z) \leq 1.2$  の組成範囲は、引  
 下げ法による場合の  $(K + L_i)$  と  $(Nb + Ta)$  との  
 比率によって、タンゲステンプロンズの構造の単一性が  
 得られる領域を示しており、カイロポーラス法によって  
 形成可能な組成範囲よりも広い組成範囲で、均一な単結  
 晶を育成することができた。

## 【手続補正3】

【補正対象書類名】明細書

【補正対象項目名】0025

【補正方法】変更

## 【補正内容】

【0025】KLNまたはKLNTの前記基本組成において、 $Ta$ の置換量が大きくなるほど、単結晶の屈折率

は小さくなってくる。また、KLN組成においては、 $Nb$ の量が大きくなるほど、即ち、 $c$ 、 $z$ が大きくなるほど、単結晶の屈折率が大きくなる。

## 【手続補正4】

【補正対象書類名】明細書

【補正対象項目名】0043

【補正方法】変更

## 【補正内容】

【0043】得られた単結晶基板の寸法は、縦50mm、横50mm、厚さ1mmであった。この単結晶基板の両方の主面に、それぞれ白金の電極を設置し、電気炉内で600℃に加熱した後、直流電圧を印加して、単分域化処理を行った。